

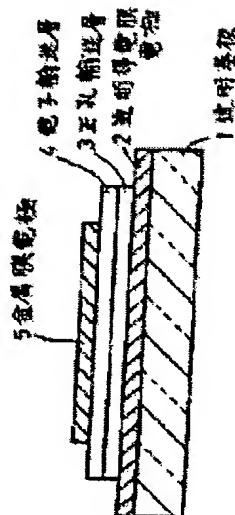
# ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT

**Patent number:** JP4087187  
**Publication date:** 1992-03-19  
**Inventor:** MORI YASUSHI; KAWADA YASUSHI  
**Applicant:** TOKYO SHIBAURA ELECTRIC CO  
**Classification:**  
- **international:** H05B33/28; C09K11/06; G09F9/00; H01L51/50;  
H05B33/26; C09K11/06; G09F9/00; H01L51/50; (IPC1-7): C09K11/06; G09F9/00; H05B33/28  
- **europen:**  
**Application number:** JP19900197868 19900727  
**Priority number(s):** JP19900197868 19900727

[Report a data error here](#)

## Abstract of JP4087187

**PURPOSE:** To accomplish an organic EL element having a long lifetime by specifying the flatness of that surface of a transparent conductive film electrode which contacts light emission layers. **CONSTITUTION:** A transparent conductive film electrode 2, light emission layers 3, 4, and metal film electrode 5 are formed one over another upon a transparent base plate 1, wherein the flatness of that surface of the transparent conductive film electrode 2 which contacts the light emission layers 3, 4 shall range between 1/10 thru 1/100 of the film thickness of light emission layers 3, 4. The thickness of the light emission layers signifies the thickness of the layer of organic compound which intervenes in the emission of the light. In case a positive hole transport layer 3 and an electron transport layer 4 are laminated, it applies to the total thickness of the two. Thereby an organic EL element is accomplished, which is provided with a long lifetime.



## ⑫ 公開特許公報 (A) 平4-87187

⑬ Int. Cl.<sup>3</sup>H 05 B 33/28  
C 09 K 11/06  
G 09 F 9/00

識別記号

3 3 6

庁内整理番号

8815-3K  
7043-4H  
6447-5G

⑭ 公開 平成4年(1992)3月19日

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全4頁)

⑮ 発明の名称 有機エレクトロルミネッセンス素子

⑯ 特 願 平2-197868

⑰ 出 願 平2(1990)7月27日

⑱ 発明者 森 章 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株式会社東芝総合研究所内

⑲ 発明者 川 田 靖 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株式会社東芝総合研究所内

⑳ 出願人 株式会社 東芝 神奈川県川崎市幸区堀川町72番地

㉑ 代理人 弁理士 鈴江 武彦 外3名

## 明細書

## 1. 発明の名称

有機エレクトロルミネッセンス素子

## 2. 特許請求の範囲

透明基板上に形成された透明導電膜電極と、金属膜電極と、これらの電極間に挟持された有機化合物からなる発光層とを有し、前記1対の電極間に電場を印加して前記発光層を発光させるエレクトロルミネッセンス素子において、前記透明導電膜電極の前記発光層と接触する面の平坦度が、前記発光層の膜厚の1/10~1/100の範囲であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 3. 発明の詳細な説明

## 〔発明の目的〕

## (産業上の利用分野)

本発明は有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

## (従来の技術)

電界発光を利用したエレクトロルミネッセンス(以下、ELと略す)素子は、薄型平面ディスプレイ素子、液晶ディスプレイの背面光源、平面光源などに用いられている。現在、実用に供されているEL素子は、蛍光体を分散させた発光層に交流電圧を印加して発光させる、いわゆる分散型EL素子である。分散型EL素子では、数10V、10kHz以上の交流電圧を印加する必要があるため、その駆動電源が、EL素子が組み込まれる小型パソコンやコンピュータなどの電子回路の雑音源となり、機器の本来の機能を阻害する原因となっている。

近年、発光層材料として有機化合物を用い、10V程度の低い直流電圧で駆動でき、従来の分散型EL素子と同等の輝度を有する有機EL素子が開発され、分散型EL素子の欠点を克服できる新たな素子として注目を集めている(C.W.Tang and S.A.VanSlyke, Appl.Phys.Lett., vol.51, pp.913-915(1987);特開昭63-264628号公報)。有機EL

素子においては、発光層に用いる有機化合物を変化させることにより、発光の色調を変化させることができる。特に、分散型EL素子では困難であった、青色の発光を得ることも容易である。このように種々の利点を有するため、有機EL素子はフルカラー平面ディスプレー素子として非常に有望である。

しかし、有機EL素子は、寿命が短いという重大な欠点を持っている。現在のところ、連続的に駆動させて初期の輝度を維持できる時間は、数100時間が限度である。

(発明が解決しようとする課題)

本発明の目的は、寿命の長い有機EL素子を提供することにある。

[発明の構成]

(課題を解決するための手段と作用)

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、透明基板上に形成された透明導電膜電極と、金属膜電極と、これらの電極間に挟持された有機化合物からなる発光層とを有し、前記1対の電極

(抵抗加熱方式、電子ビーム加熱方式)などの製膜法により、形成される。

このような構造を有する有機EL素子は、1対の電極からそれぞれ注入された電子と正孔とが発光層で再結合することによる発光現象を利用した素子であり、動作的には発光ダイオードと類似している。有機EL素子においては、低電圧駆動を実現するために、発光層の膜厚を数100nm以下にすることが要求される。

本発明において、透明導電膜電極の表面の平坦度は、基準長さを0.25mmとして測定された十点平均粗さ(JIS B0601)の値を意味する。透明導電膜電極の発光層と接触する面の平坦度を、発光層の膜厚の1/10~1/100の範囲としたのは、以下のような理由による。

まず、本発明者らは、有機EL素子の劣化する原因について検討した結果、以下のような結論に達した。有機EL素子では、電極から電子・正孔が注入された後に、発光性再結合が生じるほかに、非発光性再結合が生じて発光層中に熱が発

間に電場を印加して前記発光層を発光させるエレクトロルミネッセンス素子において、前記透明導電膜電極の前記発光層と接触する面の平坦度が、前記発光層の膜厚の1/10~1/100の範囲であることを特徴とするものである。

本発明における有機EL素子は、透明基板上に、透明導電膜電極、発光層、及び金属膜電極が順次形成された構造を有している。透明基板としては例えばガラス基板が用いられる。透明導電膜電極の材料としては例えばインジウム・スズ酸化物(ITO)が用いられる。発光層の材料としては各種有機化合物が用いられる。発光層の構成は、正孔輸送層と電子輸送層(狭義の発光層)とを積層したものが一般的である。本発明における発光層の厚さとは、発光に関与する有機化合物の層の厚さを意味する。したがって、正孔輸送層と電子輸送層とを積層した場合には、両者の合計の厚さである。金属膜電極の材料としては各種の金属、合金が用いられる。透明導電膜電極、発光層、及び金属膜電極は、スパッタリング法や真空蒸着法

生する。この熱は、有機発光層材料の結晶化を誘起する。このため、結晶粒の成長により、発光層中で空孔など欠陥が発生したり、金属電極が破損し、これらが有機EL素子を劣化させる原因となる。

有機EL素子を長寿命化するためには、有機発光層材料として、結晶化に要する活性化エネルギーの高い材料を選択することが考えられる。しかし、現在のところ、結晶化に要する活性化エネルギーを定量化できる手段がないため、最適な材料を選択することは困難である。

本発明者らは、更に結晶化の初期過程を詳細に検討した結果、有機発光層と接する透明導電膜電極の凹凸部分が結晶化の核になることを見出した。そして、この凹凸を平坦化することにより、結晶化の核が減少し、結晶粒成長に伴う有機EL素子の劣化を抑制できることを見出した。一方、一定表面積のEL素子からの発光強度を最大にするためには、電極からより多数の電子・正孔を注入すればよい。そのためには、発光層と電極との接触

画額をより大きくすればよい。

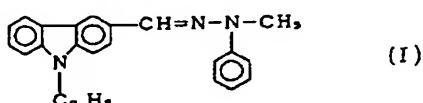
電極の平坦化により結晶化の核を減少させるごとと、発光層と電極との接触面積を増大させるごととは、相反する素子構造を要求するものである。本発明者らは、素子全体の性能を最適化する観点から種々実験し、発光層の膜厚に対する、透明導電膜電極の発光層と接触する面の平坦度の範囲を求めた。すなわち、平坦度が発光層の膜厚の $1/10$ を超えると素子の劣化が進行して寿命が短くなり、 $1/100$ 未満では大きな発光強度を得ることができない。そして、透明導電膜電極の発光層と接触する面の平坦度を、発光層の膜厚の $1/10$ ～ $1/100$ の範囲にすれば、長寿命及び発光強度の両者を満足できる。透明導電膜電極の平坦度は、例えば製膜後に研磨することにより調整することができる。

### (実施例)

以下、本発明の実施例を図面を参照して説明する。

ランプ加熱により、真空中、300°Cで、30分間熟処理して、膜抵抗を50Ω/□に調整した。

正孔輸送層材料としては、下記 I 式で表わされるヒドラゾン化合物を用いた。ITO電極上に、抵抗加熱真空蒸着法により、膜厚100nmのヒドラゾン化合物の薄膜を形成した。蒸着時のポート温度は、予備実験により決定された、ヒドラゾン化合物の熱分解が生じない値を採用した。また、水晶振動子式膜厚モニターにより監視しながら、蒸着ポートに通電する時間を調整することにより、ヒドラゾン化合物薄膜の膜厚を制御した。

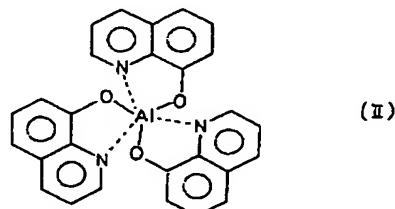


電子輸送層材料としては、下記Ⅱ式で表わされるトリス(8-キノリノール)アルミニウム(以下、Alq<sub>3</sub>と略す)を用いた。正孔輸送層上に、前記と同様に、抵抗加熱真空蒸着法により、膜厚100nmのAlq<sub>3</sub>の薄膜を形成した。

第1図に本実施例で作製した直流駆動有機EL素子の構造を示す。透明基板1上に、透明導電膜電極2、正孔輸送層3、電子輸送層4、金属膜電極5が順次積層されてELセルが構成されている。本実施例においては、ELセルは以下のようにして作製された。

透明基板としてガラス基板を用い、このガラス基板を有機溶剤により脱脂洗净しておいた。透明導電膜電極材料としてインジウム・スズ酸化物(ITO)を用いた。ガラス基板上に、スパッタリング法により、平均膜厚300nmのITO薄膜を形成した。

ITO薄膜を製膜後、研磨粒子としてカーボランダムを用い、表面粗さ計による測定を行い、表面の平坦度が20nm以下、2nm以上となるように研磨した（実施例1～5）。比較のために、研磨処理を行わなかったもの（比較例1）、及び平坦度を1nm未満にしたもの（比較例2）を作製した。表面の平坦度は、基準長さを0.25mmとして測定した十点平均粗さの値である（JIS B0601）。更に、



金属膜電極材料としては、Mg-Ag合金(Mg/Ag = 1/10)を使用した。この合金のペレットを蒸発源とし、所定形状のマスクを用いて電子ビーム蒸着法により、膜厚300nm、面積4×4mm<sup>2</sup>の薄膜電極を形成した。この際、蒸発源を収容したルツボには、アルミ製のカバーを設け、電子源であるフィラメントからの輻射熱が有機膜に達するのを防止した。

有機膜及び金属膜電極は、スパッタ槽、抵抗加熱蒸着槽、電子ビーム蒸着槽を連結した製膜装置を用いて形成し、一連の工程の間に、素子を外気に触れさせることなく各真空槽を移動させた。このように素子を外気にさらさないようにすれば、有機層の酸化、膜へのゴミの付着など、素子特性

を劣化させる要因を除去する点で有利である。

以上のようにして作製された各ELセルについて、気温25°C、相対湿度50%において、ITO電極側を正、金属電極側を負として電圧を印加し、発光特性を測定した。測定内容は、10Vを印加した発光時の電流、輝度計により測定した電圧印加直後の発光輝度、及び発光輝度が通電開始時の半分になる時間で定義される寿命である。これらの結果を表1に示す。

表 1

	平坦度 (nm)	電流 (mA)	輝度 (Cd/m <sup>2</sup> )	寿命 (時間)
実施例1	20	1.0	1000	1000
〃 2	15	1.2	1200	1500
〃 3	10	1.5	1500	1800
〃 4	5	1.2	1200	1500
〃 5	2	1.0	1000	1000
比較例1	20↑	2.5	1000	50
〃 2	1↓	0.8	700	1800

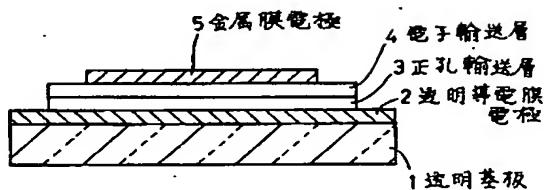
## 【発明の効果】

以上詳述したように本発明によれば、輝度が高く、かつ寿命の長い有機エレクトロルミネッセンス素子を得ることができる。

## 4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明の実施例における有機エレクトロルミネッセンス素子の構成を示す図である。  
1…透明基板、2…透明導電膜電極、3…正孔輸送層、4…電子輸送層、5…金属膜電極。

出願人代理人 弁理士 鈴江武彦



第1図